

**Procédé et installation de production de monoxyde de carbone  
par distillation cryogénique**

La présente invention est relative à un procédé et à une installation de  
5 production de monoxyde de carbone par distillation cryogénique.

Le gaz de synthèse produit par oxydation partielle ou par réformage  
contient souvent un pourcentage d'azote.

Tous les pourcentages mentionnés sont des pourcentages molaires.

Il est connu de réduire le pourcentage d'azote dans le monoxyde de  
10 carbone produit en utilisant une colonne de séparation d'azote et de monoxyde  
de carbone (EP-A-928936).

Un but de la présente invention est de pouvoir une installation de  
séparation cryogénique pour la production de monoxyde de carbone ne  
contenant substantiellement pas d'azote en utilisant moins de colonnes que les  
15 installations de l'art antérieur.

Selon un objet de la présente invention, il est prévu un procédé de  
production de monoxyde de carbone par distillation cryogénique comprenant  
les étapes de :

i) refroidir et condenser partiellement un mélange gazeux contenant  
20 du monoxyde de carbone, de l'hydrogène et de l'azote pour produire un  
mélange gazeux refroidi et partiellement condensé

ii) séparer le mélange gazeux refroidi et partiellement condensé pour  
produire un gaz enrichi en hydrogène et un liquide enrichi en monoxyde de  
carbone

25 iii) envoyer un débit du liquide enrichi en monoxyde de carbone à une  
colonne d'épuisement pour produire du monoxyde de carbone liquide dépourvu  
en hydrogène et du monoxyde de carbone gazeux enrichi en hydrogène

iv) envoyer un débit du monoxyde de carbone dépourvu en hydrogène  
à un premier niveau intermédiaire d'une colonne de distillation

30 v) soutirer en cuve de la colonne de distillation un débit liquide enrichi  
en méthane par rapport au débit alimentant la colonne de distillation

vi) soutirer en un deuxième point intermédiaire un débit riche en  
monoxyde de carbone, le deuxième point intermédiaire étant au-dessus du  
premier point intermédiaire

vii) soutirer en tête de la colonne de distillation un débit enrichi en azote et éventuellement en hydrogène par rapport au débit alimentant la colonne de distillation.

Optionnellement :

5           - le débit riche en monoxyde de carbone soutiré de la colonne de distillation est un débit liquide ;

          - un cycle de monoxyde de carbone refroidit la tête de la colonne de distillation et/ou réchauffe la cuve de la colonne de distillation et/ou réchauffe la cuve de la colonne d'épuisement ;

10          - du monoxyde de carbone de cycle est détendu dans une turbine.

Selon un autre objet de l'invention, il est prévu une installation de production de monoxyde de carbone par distillation cryogénique comprenant :

15           a) un échangeur de chaleur pour refroidir et condenser partiellement un mélange gazeux contenant du monoxyde de carbone, de l'hydrogène et de l'azote pour produire un mélange gazeux refroidi et partiellement condensé

          b) un séparateur pour séparer le mélange gazeux refroidi et partiellement condensé pour produire un gaz enrichi en hydrogène et un liquide enrichi en monoxyde de carbone

20           c) des moyens pour emmener le mélange gazeux refroidi et partiellement condensé de l'échangeur de chaleur au séparateur

          d) une colonne d'épuisement et des moyens pour emmener au moins une partie du liquide enrichi en monoxyde de carbone à celle-ci

25           e) des moyens pour soutirer un gaz enrichi en hydrogène de la tête de la colonne d'épuisement et des moyens pour soutirer un liquide dépourvu en hydrogène en cuve de la colonne d'épuisement

30           f) une colonne de distillation, des moyens pour envoyer un débit du liquide dépourvu en hydrogène à un premier point intermédiaire de la colonne de distillation, des moyens pour soutirer un liquide de cuve de la colonne de distillation, des moyens pour soutirer un gaz de tête de la colonne de distillation et des moyens pour soutirer un fluide intermédiaire à un deuxième point intermédiaire de la colonne de distillation, le deuxième point intermédiaire se trouvant au-dessus du premier point intermédiaire.

Eventuellement :

- la colonne de distillation a un condenseur de tête et/ou un rebouilleur de cuve ;
- la colonne d'épuisement a un rebouilleur de cuve ;
- 5       - la ou les colonne(s) est (sont) réchauffée(s) et/ou refroidie(s) au moyen d'un cycle de monoxyde de carbone gazeux.

L'invention sera décrite en plus de détail en se référant à l'unique figure.

Dans la figure, un gaz de synthèse 1 contenant 40 % d'hydrogène, 58 % de monoxyde de carbone, 0,1 % de méthane, 0,5 % d'azote et 1,3 % d'argon.

- 10       Ce gaz se refroidit dans un échangeur 3 pour former un débit refroidi 5 qui est envoyé à un pot séparateur 7 où il se condense partiellement. Le gaz formé 9, riche en hydrogène, se réchauffe dans l'échangeur 3 et est envoyé à un consommateur.

- 15       Le liquide 11 est détendu dans une vanne 13 pour former un débit 15. Le débit liquide 15 est envoyé en tête d'une colonne d'épuisement 17 chauffée en cuve par un débit Q1 envoyé au rebouilleur de cuve, qui peut par exemple faire partie d'un cycle de monoxyde de carbone. Un débit gazeux résiduaire RSD enrichi en hydrogène est sorti de la tête de la colonne d'épuisement 17. Un débit liquide 19 dépourvu en hydrogène est soutiré en cuve de la colonne 17,
- 20       détendu dans la vanne 21 et envoyé à un point intermédiaire d'une colonne de distillation 23. La colonne 23 est chauffée en cuve par un débit Q2 envoyé au rebouilleur de cuve et refroidie en tête par un débit Q3 envoyé au condenseur de tête, les deux débits pouvant faire partie d'un cycle de monoxyde de carbone.

- 25       Un débit liquide 27 riche en méthane est soutiré en cuve de la colonne 23. Un débit liquide riche en monoxyde de carbone 29 est soutiré à un point intermédiaire supérieur au point d'arrivée du liquide 19. Ce liquide contient de préférence 98,5 % de monoxyde de carbone, moins d'1 % d'argon, moins de  $10^{-2}$  ppm de méthane et 0,4 % d'azote. Un mélange gazeux d'hydrogène et
- 30       d'azote RSD N2 est soutiré en tête de la colonne de distillation 3.

Le débit RSD N2 est mélangé avec le débit RSD provenant de la colonne 17 et sort de l'installation pour être rejeté à l'atmosphère et/ou brûlé après être réchauffé dans l'échangeur 3.

Le liquide 29 rejoint un débit de liquide 31 provenant du cycle et le débit mélangé est détendu dans une vanne 33 avant de se réchauffer dans l'échangeur 3 pour former le produit 35.

L'installation est tenue en froid par une turbine de monoxyde de carbone gazeuse 37, détente d'un autre fluide et/ou par biberonnage.

## REVENDICATIONS

1. Procédé de production de monoxyde de carbone par distillation cryogénique comprenant les étapes de :

5 i) refroidir et condenser partiellement un mélange gazeux (1) contenant du monoxyde de carbone, de l'hydrogène et de l'azote pour produire un mélange gazeux refroidi et partiellement condensé

10 ii) séparer le mélange gazeux refroidi et partiellement condensé (5) pour produire un gaz enrichi en hydrogène et un liquide enrichi en monoxyde de carbone

iii) envoyer un débit du liquide enrichi en monoxyde de carbone à une colonne d'épuisement (17) pour produire du monoxyde de carbone liquide dépourvu en hydrogène et du monoxyde de carbone gazeux enrichi en hydrogène

15 iv) envoyer un débit (19) du monoxyde de carbone dépourvu en hydrogène à un premier niveau intermédiaire d'une colonne de distillation (23)

v) soutirer en cuve de la colonne de distillation un débit liquide enrichi en méthane (27) par rapport au débit alimentant la colonne de distillation

20 vi) soutirer en un deuxième point intermédiaire un débit (29) riche en monoxyde de carbone, le deuxième point intermédiaire étant au-dessus du premier point intermédiaire

vii) soutirer en tête de la colonne de distillation un débit enrichi en azote et éventuellement en hydrogène par rapport au débit alimentant la colonne de distillation.

25

2. Procédé selon la revendication 1 dans lequel le débit (29) riche en monoxyde de carbone soutiré de la colonne de distillation est un débit liquide.

30 3. Procédé selon la revendication 1 ou 2 dans lequel un cycle (Q1, Q2, Q3) de monoxyde de carbone refroidit la tête de la colonne de distillation (23) et/ou réchauffe la cuve de la colonne de distillation et/ou réchauffe la cuve de la colonne d'épuisement (17).

4. Procédé selon l'une des revendications précédentes dans lequel du monoxyde de carbone de cycle est détendu dans une turbine (37).

5. Installation de production de monoxyde de carbone par distillation cryogénique comprenant :

a) un échangeur de chaleur (3) pour refroidir et condenser partiellement un mélange gazeux (1) contenant du monoxyde de carbone, de l'hydrogène et de l'azote pour produire un mélange gazeux refroidi et partiellement condensé (5)

10 b) un séparateur (7) pour séparer le mélange gazeux refroidi et partiellement condensé pour produire un gaz enrichi en hydrogène et un liquide enrichi en monoxyde de carbone

c) des moyens pour emmener le mélange gazeux refroidi et partiellement condensé de l'échangeur de chaleur au séparateur

15 d) une colonne d'épuisement (17) et des moyens pour emmener au moins une partie du liquide enrichi en monoxyde de carbone à celle-ci

e) des moyens pour soutirer un gaz enrichi en hydrogène de la tête de la colonne d'épuisement et des moyens pour soutirer un liquide (19) dépourvu en hydrogène en cuve de la colonne d'épuisement

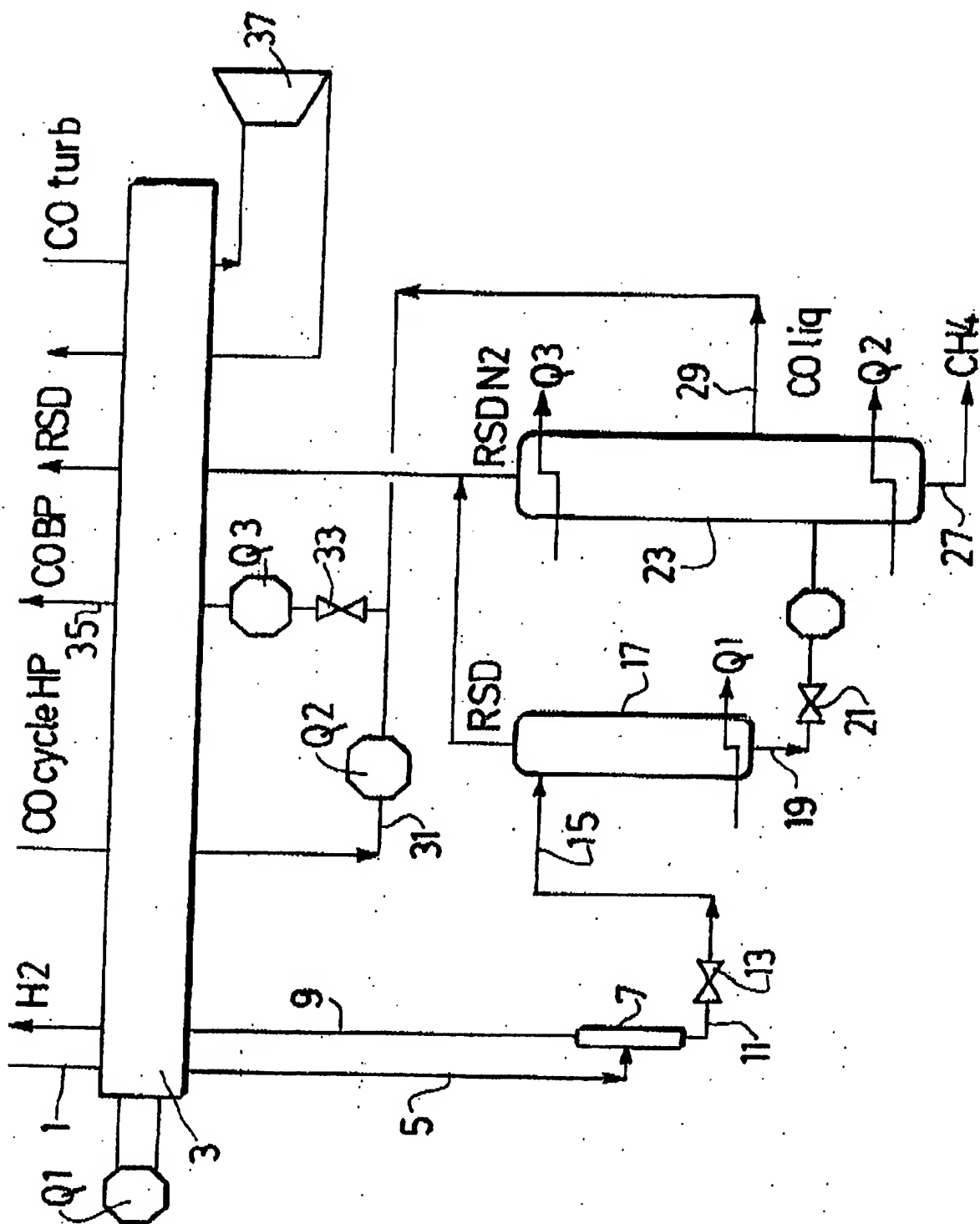
20 f) une colonne de distillation (23), des moyens pour envoyer un débit du liquide dépourvu en hydrogène à un premier point intermédiaire de la colonne de distillation, des moyens pour soutirer un liquide de cuve (27) de la colonne de distillation, des moyens pour soutirer un gaz de tête (RSD N2) de la colonne de distillation et des moyens pour soutirer un fluide intermédiaire (29) à  
25 un deuxième point intermédiaire de la colonne de distillation, le deuxième point intermédiaire se trouvant au-dessus du premier point intermédiaire.

6. Installation selon la revendication 5 dans laquelle la colonne de distillation (23) a un condenseur de tête et/ou un rebouilleur de cuve.

30

7. Installation selon la revendication 5 ou 6 dans laquelle la colonne d'épuisement (17) a un rebouilleur de cuve.

8. Installation selon la revendication 5 ou 6 dans laquelle la ou les colonne(s) est (sont) réchauffée(s) et/ou refroidie(s) au moyen d'un cycle de monoxyde de carbone gazeux.





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/FR2004/050446

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 F25J3/02 C01B31/18 C01B3/50

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 F25J C01B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 933 330 A (AIR PROD & CHEM) 4 August 1999 (1999-08-04) figure	1-8
A	EP 0 928 936 A (AIR PROD & CHEM) 14 July 1999 (1999-07-14) cited in the application figure 3	1-8
A	US 5 609 040 A (BILLY JEAN ET AL) 11 March 1997 (1997-03-11) figures 3,4	1-8
A	DE 195 41 339 A (LINDE AG) 7 May 1997 (1997-05-07) figure 1	1-8
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

23 February 2005

Date of mailing of the international search report

07/03/2005

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Göritz, D

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/FR2004/050446

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>US 4 478 621 A (FABIAN RAINER)  23 October 1984 (1984-10-23)  figure 1</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-8

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/FR2004/050446

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 0933330	A	04-08-1999	DE	69908667 D1	17-07-2003
			EP	0933330 A2	04-08-1999
			US	6070430 A	06-06-2000
<hr/>					
EP 0928936	A	14-07-1999	DE	69904514 D1	30-01-2003
			EP	0928936 A2	14-07-1999
			US	6062042 A	16-05-2000
<hr/>					
US 5609040	A	11-03-1997	FR	2718428 A1	13-10-1995
			CA	2146736 A1	12-10-1995
			CN	1117574 A	28-02-1996
			DE	69504735 D1	22-10-1998
			DE	69504735 T2	06-05-1999
			EP	0676373 A1	11-10-1995
			ES	2122468 T3	16-12-1998
			JP	8081211 A	26-03-1996
<hr/>					
DE 19541339	A	07-05-1997	DE	19541339 A1	07-05-1997
<hr/>					
US 4478621	A	23-10-1984	DE	3215829 A1	03-11-1983
			CA	1204049 A1	06-05-1986
			DE	3366533 D1	06-11-1986
			EP	0092770 A2	02-11-1983
			JP	1654091 C	13-04-1992
			JP	3016597 B	05-03-1991
			JP	58195778 A	15-11-1983
			SU	1358794 A3	07-12-1987

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande Internationale No

PCT/FR2004/050446

## A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE

CIB 7 F25J3/02 C01B31/18 C01B3/50

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

## B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

CIB 7 F25J C01B

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)

EPO-Internal

## C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie *	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	EP 0 933 330 A (AIR PROD & CHEM) 4 août 1999 (1999-08-04) figure	1-8
A	EP 0 928 936 A (AIR PROD & CHEM) 14 juillet 1999 (1999-07-14) cité dans la demande figure 3	1-8
A	US 5 609 040 A (BILLY JEAN ET AL) 11 mars 1997 (1997-03-11) figures 3,4	1-8
A	DE 195 41 339 A (LINDE AG) 7 mai 1997 (1997-05-07) figure 1	1-8
	-/-	

☒ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

### \* Catégories spéciales de documents cités:

\*A\* document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent

\*E\* document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date

\*L\* document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)

\*O\* document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens

\*P\* document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

\*T\* document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

\*X\* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

\*Y\* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

\*Z\* document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

23 février 2005

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

07/03/2005

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale

Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Göritz, D

**RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE**

Demande Internationale No

PCT/FR2004/050446

**C.(suite) DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS**

Catégorie	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	US 4 478 621 A (FABIAN RAINER) 23 octobre 1984 (1984-10-23) figure 1  -----	1-8

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale No

PCT/FR2004/050446

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP 0933330	A	04-08-1999	DE 69908667 D1	17-07-2003
			EP 0933330 A2	04-08-1999
			US 6070430 A	06-06-2000
EP 0928936	A	14-07-1999	DE 69904514 D1	30-01-2003
			EP 0928936 A2	14-07-1999
			US 6062042 A	16-05-2000
US 5609040	A	11-03-1997	FR 2718428 A1	13-10-1995
			CA 2146736 A1	12-10-1995
			CN 1117574 A	28-02-1996
			DE 69504735 D1	22-10-1998
			DE 69504735 T2	06-05-1999
			EP 0676373 A1	11-10-1995
			ES 2122468 T3	16-12-1998
			JP 8081211 A	26-03-1996
DE 19541339	A	07-05-1997	DE 19541339 A1	07-05-1997
US 4478621	A	23-10-1984	DE 3215829 A1	03-11-1983
			CA 1204049 A1	06-05-1986
			DE 3366533 D1	06-11-1986
			EP 0092770 A2	02-11-1983
			JP 1654091 C	13-04-1992
			JP 3016597 B	05-03-1991
			JP 58195778 A	15-11-1983
			SU 1358794 A3	07-12-1987

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☒ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**